

List of cited documents

- 1) Japanese Patent Publication No. JP H08-315986  
corresponding to US 5693428 A
- 2) Japanese Patent Publication No. JP 2000-321098
- 3) Japanese Patent Publication No. JP 2000-268978
- 4) Japanese Patent Publication No. JP 2000-268958
- 5) Japanese Patent Publication No. JP 2002-134273
- 6) Japanese Patent Publication No. JP H11-354273
- 7) Japanese Patent Publication No. JP H10-039791
- 8) Japanese Patent Publication No. JP 2001-109399  
corresponding to US 7091936 B1
- 9) Japanese Patent Publication No. JP 2001-290441  
corresponding to US 6366025 B1

# PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 08-315986

(43)Date of publication of application : 29.11.1996

(51)Int.Cl.

H05B 33/14

(21)Application number : 07-142716

(71)Applicant : SANYO ELECTRIC CO LTD

(22)Date of filing : 16.05.1995

(72)Inventor : FUJII TAKANORI

SANO KENJI

HAMADA YUJI

TAKEUCHI KOSUKE

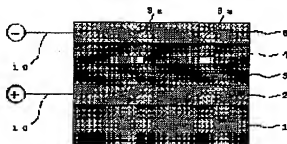
SHIBATA KENICHI

## (54) ORGANIC ELECTROLUMINESCENT ELEMENT

(57)Abstract:

**PURPOSE:** To provide an organic electroluminescent element in which emissions of plural colors with sufficient luminances can be easily and efficiently performed.

**CONSTITUTION:** A light emitting hole transporting layer 3 a light emitting electron transporting layer 4 and a light emitting layer 5 containing an organic material emitting fluorescence differed in color in visual area are provided between a hole injecting electrode 2 and an electron injecting electrode 6. In such an organic electroluminescent element, a non-light emitting hole transporting part 3a and a non-light emitting electron transporting part 3a are partially provided between prescribed layers.



## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

21.03.2000

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

3143362

[Date of registration]

22.12.2000

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's

decision of rejection]

[Date of extinction of right]

(51) Int.Cl.<sup>8</sup>

H 0 5 B 33/14

識別記号

庁内整理番号

F J

H 0 5 B 33/14

技術表示箇所

審査請求 未請求 請求項の数 3 F D (全 12 頁)

(21) 出願番号 特願平7-142716

(22) 出願日 平成7年(1995)5月16日

(71) 出願人 000001889

三洋電機株式会社

大阪府守口市京阪本通2丁目5番5号

(72) 発明者 藤井 孝則

大阪府守口市京阪本通2丁目5番5号 三

洋電機株式会社内

(72) 発明者 佐野 健志

大阪府守口市京阪本通2丁目5番5号 三

洋電機株式会社内

(72) 発明者 浜田 祐次

大阪府守口市京阪本通2丁目5番5号 三

洋電機株式会社内

(74) 代理人 弁理士 松川 克明

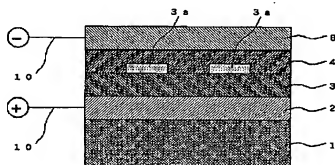
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 有機エレクトロルミネッセンス素子

(57) 【要約】

【目的】 十分な輝度をもつ複数色の発光が簡単かつ効率良く行なえる有機EL素子を提供する。

【構成】 ホール注入電極2と電子注入電極6との間に、可視領域で異なる色彩の蛍光を発する有機材料を含有した発光性のホール輸送層3や発光性の電子輸送層4や発光層5が設けられた有機エレクトロルミネッセンス素子において、所定の層間に非発光性のホール輸送部3aや非発光性の電子輸送部4aを部分的に設けるようにした。



## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 ホール注入電極と電子注入電極との間に、少なくとも可視領域で異なる色彩の蛍光を発する有機材料を含有した発光性のホール輸送層と発光性の電子輸送層とが設けられ、上記発光性のホール輸送層が発光する有機エレクトロルミネッセンス素子において、上記発光性のホール輸送層と発光性の電子輸送層との間に非発光性のホール輸送部が部分的に設けられたことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項2】 ホール注入電極と電子注入電極との間に、少なくとも可視領域で異なる色彩の蛍光を発する有機材料を含有した発光性のホール輸送層と発光性の電子輸送層とが設けられ、上記発光性の電子輸送層が発光する有機エレクトロルミネッセンス素子において、上記発光性のホール輸送層と発光性の電子輸送層との間に非発光性の電子輸送部が部分的に設けられたことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項3】 ホール注入電極と電子注入電極との間に、少なくとも可視領域で異なる色彩の蛍光を発する有機材料を含有した発光性のホール輸送層と発光層と発光性の電子輸送層とが設けられ、上記発光層が発光する有機エレクトロルミネッセンス素子において、上記発光性のホール輸送層と発光層との間に非発光性の電子輸送部が部分的に設けられ及び/又は上記発光層と発光性の電子輸送層との間に非発光性のホール輸送部が部分的に設けられたことを特徴とする有機エレクトロルミネッセンス素子。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【産業上の利用分野】 この発明は、ホール注入電極と電子注入電極との間に発光性の有機層が設けられた有機エレクトロルミネッセンス素子に係り、特に、複数の発光が簡単かつ効率よく行なえる有機エレクトロルミネッセンス素子に関するものである。

## 【0002】

【従来の技術】 近年、情報機器の多様化等ともなって、従来より一般に使用されているCRTに比べて消費電力や空間占有面積が少ない平面表示素子のニーズが高まり、このような平面表示素子の一つとしてエレクトロルミネッセンス素子（以下、EL素子と略す。）が注目されている。

【0003】そして、このEL素子は使用する材料によって無機EL素子と有機EL素子に大別され、無機EL素子においては、一般に発光部に高電界を作用させ、電子をこの高電界中で加速して発光中心に衝突させ、これにより発光中心を励起させて発光させるようになっている一方、有機EL素子においては、電子注入電極とホール注入電極とからそれぞれ電子とホールとを発光部に注入させ、このように注入された電子とホールとを発光中心で再結合させて、有機材料を励起させ、この有機材

料が励起状態から基底状態に戻るときに蛍光を発光するようになっている。

【0004】ここで、無機EL素子においては、上記のように高電界を作用させるため、その駆動電圧として100～200Vと高い電圧を必要とするのに対し、上記の有機EL素子においては、5～20V程度の低い電圧で駆動できるという利点があり、近年、このような有機EL素子について様々な研究が行なわれるようになった。

【0005】そして、このような有機EL素子における素子構造としては、ホール注入電極と電子注入電極との間にホール輸送層と発光層と電子輸送層とを積層させたDH構造と称される三層構造のものや、ホール注入電極と電子注入電極との間にホール輸送層と電子輸送性の発光層とが積層されたSH-A構造と称される二層構造のものや、ホール注入電極と電子注入電極との間にホール輸送性の発光層と電子輸送層とが積層されたSH-B構造と称される二層構造のものが一般に知られていた。

【0006】また、上記のような有機EL素子においては、発光材料である蛍光物質を適当に選択することによって適当な色彩に発光する発光素子を得ることができ、近年においては、交通標識等の表示装置やフルカラーやフルカラーの表示装置等としても利用するために、有機EL素子を用いて同時に複数の色の発光が得られるようにするための研究が行なわれるようになった。

【0007】そして、従来においては、このように有機EL素子を用いて複数の色の発光が得られるようにするため、例えば、特開平3-187192号公報においては、ホール注入電極と電子注入電極との間に発光層を設けるにあたり、マスクを用いて発光ピーク波長が異なる複数の発光層が重ならないように上手く接合させて、同一平面上に複数の発光層をモザイク状に形成し、それぞれの発光層からそれぞれ異なった色彩の発光が得られるようにしたものが提案されている。

【0008】しかし、上記のようにマスクを用いて発光層相互が重ならないように上手く接合させて、同一平面上に複数の発光層を形成することは非常に困難であり、発光層相互の接合部分において発光層相互が重なりあい、これによって発光輝度が低下したり発光色が変化したりするという問題があり、また発光層相互の接合部分に隙間が生じ、その隙間を通して電流がリークして発光が得られなくなる等の問題があった。

【0009】また、特開平6-68977号公報においては、発光ピーク波長の異なる複数の有機EL素子をそれぞれの発光部が重ならないように積み重ね、それぞれの有機EL素子を発光させて、異なった色彩の発光が得られるようにしたものが提案されている。

【0010】しかし、同公報に示されるものにおいて、有機EL素子を複数積み重ねるため、光を取り出す面から離れた位置にある有機EL素子において発光され

た光は他の有機 E L 素子を通して導かれるため、途中における他の有機 E L 素子によってこの光が吸収されたり、反射されたり、拡散されたりし、これによって光の取出側の面に導かれる光の輝度が著しく低下すると共に、有機 E L 素子から発光された光の色が途中で変化することもあり、十分な輝度をもつ適切な複数色の発光が得られない等の問題があった。

【0011】さらに、米国特許第 5294870 号公報においては、発光層において青色の発光を行なう有機 E L 素子を用い、この有機 E L 素子において発光された光を取り出す側の面に、青色の光を吸収して緑色の光や、赤色の光を出す各蛍光層を設け、これによって複数色の光を得るようにしたものが提案されていた。

【0012】しかし、同公報のものにおいても、発光層において発光された低エネルギーの可視光を有機 E L 素子に設けられた透明電極やガラス基板を通して各蛍光層に導くため、蛍光層に導かれる光が弱く、また蛍光層に導かれる間に発光された光が透明電極やガラス基板で反射されたり、吸収されたり、拡散されたりしてさらに弱くなり、各蛍光層における蛍光物質を十分に励起させることが困難で、各蛍光層において緑色や赤色の光を十分に発光させることができず、十分な輝度をもつ複数色の光が得られない等の問題があった。

【0013】

【発明が解決しようとする課題】この発明は、有機 E L 素子を用いて複数色の発光を行なう場合における上記のような問題を解決することを課題とするものであり、十分な輝度をもつ複数色の発光が簡単かつ効率良く行なえる有機 E L 素子を提供するものである。

【0014】

【課題を解決するための手段】上記のような課題を解決するため、この発明における第 1 の有機エレクトロルミネッセンス素子においては、ホール注入電極と電子注入電極との間に、少なくとも可視領域で異なる色彩の蛍光を発する有機材料を含有した発光性のホール輸送層と発光性の電子輸送層とが設けられ、上記発光性のホール輸送層が発光する有機エレクトロルミネッセンス素子において、上記発光性のホール輸送層と発光性の電子輸送層との間に非発光性のホール輸送部を部分的に設けるようにしたのである。

【0015】また、この発明の第 2 の有機エレクトロルミネッセンス素子においては、ホール注入電極と電子注入電極との間に、少なくとも可視領域で異なる色彩の蛍光を発する有機材料を含有した発光性のホール輸送層と発光性の電子輸送層とが設けられ、上記発光性の電子輸送層が発光する有機エレクトロルミネッセンス素子において、上記発光性のホール輸送層と発光性の電子輸送層との間に非発光性の電子輸送部を部分的に設けるようにしたのである。

【0016】さらに、この発明の第 3 の有機エレクトロ

ルミネッセンス素子においては、ホール注入電極と電子注入電極との間に、少なくとも可視領域で異なる色彩の蛍光を発する有機材料を含有した発光性のホール輸送層と発光層と発光性の電子輸送層とが設けられ、上記発光層が発光する有機エレクトロルミネッセンス素子において、上記発光性のホール輸送層と発光層との間に非発光性の電子輸送部を部分的に設け及び／又は上記発光層と発光性の電子輸送層との間に非発光性のホール輸送部を部分的に設けるようにしたのである。

【0017】ここで、この発明の各有機 E L 素子においては、そのホール注入電極として、金や ITO（インジウムスズ酸化物）等の仕事関数の大きな材料を用いるようにする一方、電子注入電極としては、マグネシウム等の仕事関数の小さな電極材料を用いるようにし、E L 光を取り出すために、少なくとも一方の電極を透明にする必要があり、一般にはホール注入電極に透明で仕事関数の大きい ITO を用いるようにする。

【0018】また、この発明における上記の各有機 E L 素子において、発光性のホール輸送層や発光性の電子輸送層を設ける場合、ホール輸送性や電子輸送性の低い発光材料を利用して適当な色彩の蛍光が得られるようにすると共に濃度消光を抑制し、さらに有機 E L 素子の製造も容易に行なえるようにするため、発光性のホール輸送層の場合には、非発光性のホール輸送部に使用するホール輸送材料に適当な発光材料を含有させるようにし、また発光性の電子輸送層の場合には、非発光性の電子輸送部に使用する電子輸送材料に適当な発光材料を含有させるようにすることが好ましい。

【0019】

【作用】この発明における上記の各有機 E L 素子の作用を例示する図 1 ～図 3 に基づいて説明する。

【0020】ここで、第 1 の有機 E L 素子においては、図 1 に示すように、基板 1 上にホール注入電極 2 を設け、このホール注入電極 2 と電子注入電極 6 との間に、可視領域で異なる色彩の蛍光を発する有機材料を含有した発光性のホール輸送層 3 と発光性の電子輸送層 4 とを設けており、この状態では上記発光性のホール輸送層 3 が発光するようになっている。

【0021】そして、上記のように発光性のホール輸送層 3 と発光性の電子輸送層 4 との間に非発光性のホール輸送部 3 a を部分的に設けると、この非発光性のホール輸送部 3 a により発光性のホール輸送層 3 への電子の注入が阻害され、発光性のホール輸送層 3 における発光が抑制されるようになる。このため、非発光性のホール輸送部 3 a が設けられた部分においては、発光性の電子輸送層 4 が発光するようになり、非発光性のホール輸送部 3 a を設けていない部分と設けている部分とでは異なる色彩の蛍光を発するようになる。

【0022】また、第 2 の有機 E L 素子においては、図 2 に示すように、ホール注入電極 2 と電子注入電極 6 との

間に、可視領域で異なる色彩の蛍光を発する有機材料を含有した発光性のホール輸送層3と発光性の電子輸送層4とを設けており、この状態では上記発光性の電子輸送層4が発光するようになっている。

【0023】そして、上記のように発光性のホール輸送層3と発光性の電子輸送層4との間に非発光性の電子輸送部4aを部分的に設けると、この非発光性の電子輸送部4aにより発光性の電子輸送層4へのホールの注入が阻害され、発光性の電子輸送層4における発光が抑制されるようになる。このため、非発光性の電子輸送部4aが設けられた部分においては、発光性のホール輸送層3が発光し、非発光性の電子輸送部4aを設けていない部分と設けている部分とは異なった色彩の蛍光を発するようになる。

【0024】また、第3の有機EL素子においては、図3に示すように、ホール注入電極2と電子注入電極6との間に、可視領域で異なる色彩の蛍光を発する有機材料を含有した発光性のホール輸送層3と発光層5と発光性の電子輸送層4とを設けており、この状態では上記発光層5が発光するようになっている。

【0025】そして、上記のように発光性のホール輸送層3と発光層5との間に非発光性の電子輸送部4aを部分的に設けると、この非発光性のホール輸送部3aにより発光層5への電子の注入が阻害され、発光層5における発光が抑制されるようになる。このため、非発光性のホール輸送部3aが設けられた部分においては、発光性の電子輸送層4が発光するようになり、非発光性のホール輸送部3aを設けていない部分と設けている部分とは異なる色彩の蛍光を発するようになる。

【0026】また、上記の発光層5と発光性の電子輸送層4との間に非発光性のホール輸送部3aを部分的に設けると、この非発光性の電子輸送部4aにより発光層5へのホールの注入が阻害され、発光層5における発光が抑制されるようになる。このため、非発光性の電子輸送部4aが設けられた部分においては、発光性のホール輸送層3が発光するようになり、非発光性の電子輸送部4aを設けていない部分と設けている部分とは異なる色彩の蛍光を発するようになる。

【0027】さらに、図3に示すように、発光性のホール輸送層3と発光層5との間に非発光性の電子輸送部4aを部分的に設けると共に、発光層5と発光性の電子輸送層4との間に非発光性のホール輸送部3aを部分的に設けると、非発光性の電子輸送部4aや非発光性のホール輸送部3aが設けられていない部分においては発光層5が発光し、非発光性の電子輸送部4aが設けられた部分においては発光性の電子輸送層4が発光し、非発光性の電子輸送部4aが設けられた部分においては発光性のホール輸送層3が発光し、3色の異なった色彩の蛍光が得られるようになる。

【0028】そして、上記の各有機EL素子において、上

記の非発光性の電子輸送部4aや非発光性のホール輸送部3aを適当な形状に設けることによって色彩の異なった様々な表示が可能になる。

【0029】また、非発光性のホール輸送部3aが設けられた部分と、非発光性の電子輸送部4aが設けられた部分と、非発光性の電子輸送部4aやホール輸送部3aが設けられていない部分とをマトリクスに設け、これをマトリクス電極による駆動や液晶フィルターのON、OFFにより制御すると、表示品位の高いマルチカラーの表示が行えるようになる。

【0030】

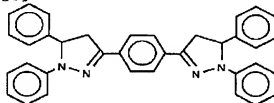
【実施例】以下、この発明の実施例を添付図面に基づいて具体的に説明する。

【0031】（実施例1）この実施例1における有機EL素子は、上記第1の有機EL素子の例であり、図1に示す構造になっている。

【0032】ここで、この実施例の有機EL素子は、透明なガラス基板1上にインジウム—スズ酸化物（以下、ITOという。）からなる膜厚が200Åになった透明なホール注入電極2を形成し、このホール注入電極2上に下記の下記1に示すピラゾリン化合物（以下、PYR-9という。）を用いて膜厚が500Åになった発光性のホール輸送層3を形成し、このホール輸送層3の上に下記の下記2に示すN、N'-ジフェニル-N、N'-ビス（3-メチルフェニル）-1,1'-ビフェニル-4,4'-ジアミン（以下、MTPDという。）を用いて膜厚が100Åになった非発光性のホール輸送部3aを部分的に形成し、上記のホール輸送層3とこのホール輸送部3aの上に下記の下記3に示すアゾメチン錯体（以下、1AZM-Hexという。）を用いて膜厚が500Åになった発光性の電子輸送層4を形成し、さらにこの電子輸送層4上にマグネシウム—インジウム合金からなる膜厚が200Åの電子注入電極6を形成した構造になっている。そして、上記のホール注入電極2と電子注入電極6とにそれぞれリード線10を接続して、ホール注入電極2に+、電子注入電極6に-のバイアス電圧を印加させるようになっている。

【0033】

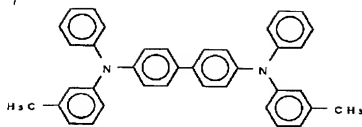
【化1】



PYR-9

【0034】

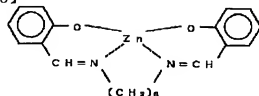
【化2】



M T P D

【0035】

【化3】



1 A Z M - H e x

【0036】そして、この実施例1の有機EL素子を製造するにあたっては、表面にITOからなるホール注入電極2が形成されたガラス基板1を中性洗剤により洗浄した後、これをアセトン中で20分間、エタノール中で20分間それぞれ超音波洗浄を行なった。

【0037】次いで、ガラス基板1上に形成された上記のホール注入電極2上に前記のPYR-9を真空蒸着させて発光性のホール輸送層3を形成し、このホール輸送層3上の一部にメタルマスクを用いて前記のMTPDを真空蒸着させて非発光性のホール輸送部3aを部分的に形成した。そして、このホール輸送部3aと上記のホール輸送層3との上に、前記の1AZM-Hexを真空蒸着させて発光性の電子輸送層4を形成し、更にこの電子輸送層4上にマグネシウム・インジウム合金からなる電子注入電極6を真空蒸着により形成した。なお、これらの真空蒸着は、何れもモリブデンボートを用いた抵抗加熱法によって行ない、真空度 $1 \times 10^{-5}$  Torr以下、基板温度 $20 \sim 30^\circ\text{C}$ の条件で行なった。

【0038】そして、この実施例1の有機EL素子におけるホール注入電極2と電子注入電極6との間に10Vの電圧を印加すると、非発光性のホール輸送部3aを形成した領域においては、輝度 $400\text{cd}/\text{m}^2$ 、発光ピーク波長 $460\text{nm}$ の青色発光が得られる一方、非発光性のホール輸送部3aが形成されていない領域においては、輝度 $1000\text{cd}/\text{m}^2$ 、発光ピーク波長 $490\text{nm}$ の青緑色発光が得られ、同時に青色と青緑色との発光を得ることができた。なお、発光スペクトルにより、非発光性のホール輸送部3a4を形成した領域における青色発光は電子輸送層4に用いた1AZM-Hexによるものであることが、また非発光性のホール輸送部3aを形成していない領域における青緑色発光はホール輸送層3に用いたPYR-9によるものであることが確認され

10 た。

【0039】(実施例2) この実施例2の有機EL素子も、上記実施例1の有機EL素子と同様に、前記第1の有機EL素子の例であり、図1に示す構造になっている。

【0040】ここで、この実施例2の有機EL素子においては、発光性のホール輸送層3の材料に、上記実施例1における非発光性のホール輸送部3aに使用したMTPDと、発光材料である下記(化4)に示すルブレンとを用い、上記のMTPDに対してルブレンを5重量%含有させるようにして、両者をホール注入電極2上に共蒸着させて発光性のホール輸送層3を形成すると共に、発光性の電子輸送層5の材料に下記(化5)に示すトリス(8-ヒドロキシキノリン)アルミニウム(以下、Alq<sub>3</sub>という。)を用いるようにし、それ以外については、上記実施例1と同様にして有機EL素子を得た。

【0041】

【化4】



ル ブ レ ン

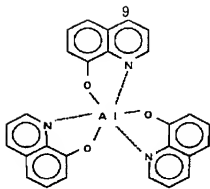
【0042】

【化5】

40

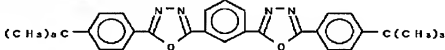
50





A l q 3

【0043】そして、この実施例2の有機EL素子におけるホール注入電極2と電子注入電極6との間に10Vの電圧を印加すると、非発光性のホール輸送部3aを形成した領域においては、輝度 $1500\text{cd/m}^2$ 、発光ピーク波長 $520\text{nm}$ の緑色発光が得られる一方、非発光性のホール輸送部3aが形成されていない領域においては、輝度 $1300\text{cd/m}^2$ 、発光ピーク波長 $560\text{nm}$ の黄色発光が得られ、同時に緑色と黄色との発光を得ることができた。なお、発光スペクトルにより、非発光性のホール輸送部3aを形成した領域における緑色発光は電子輸送層5に用いたAlq<sub>3</sub>によるものであることが、また非発光性のホール輸送部3aを形成していない領域における黄色発光はホール輸送層3に用いたルプ\*



O D X - 7

【0047】そして、この実施例3の有機EL素子を製造するにあたっては、表面にITOからなるホール注入電極2が形成されたガラス基板1を中性洗剤により洗浄した後、これをアセトン中で20分間、エタノール中で20分間それぞれ超音波洗浄を行なった。

【0048】次いで、ガラス基板1上に形成された上記のホール注入電極2上に前記のPYR-9を真空蒸着させて発光性のホール輸送層3を形成し、このホール輸送層3上の一部にメタルマスクを用いて前記のOXD-7を真空蒸着させて非発光性の電子輸送部4aを部分的に形成した。そして、この電子輸送部4aと上記のホール輸送層3との上に、前記のAlq<sub>3</sub>を真空蒸着させて発光性の電子輸送層4を形成し、更にこの電子輸送層5上にマグネシウム・インジウム合金からなる電子注入電極6を真空蒸着により形成した。なお、これらの真空蒸着、は何れもモリブデンボートを用いた抵抗加熱法によって行ない、真空度 $1 \times 10^{-5}\text{ Torr}$ 以下、基板温度 $20 \sim 30^\circ\text{C}$ の条件で行なった。

【0049】そして、この実施例3の有機EL素子におけるホール注入電極2と電子注入電極6との間に10V

\* レンによるものであることが確認された。

【0044】(実施例3) この実施例3における有機EL素子は、前記第2の有機EL素子の例であり、図2に示す構造になっている。

【0045】ここで、この実施例の有機EL素子は、透明なガラス基板1上にITOからなる膜厚が $2000\text{\AA}$ になった透明なホール注入電極2を形成し、このホール注入電極2上に前記の化1に示すPYR-9を用いて膜厚が $500\text{\AA}$ になった発光性のホール輸送層3を形成し、このホール輸送層3上に下記の化6に示すオキサジアゾール化合物(以下、OXD-7という。)を用いて膜厚が $100\text{\AA}$ になった非発光性の電子輸送部4aを部分的に形成し、上記のホール輸送層3とこの電子輸送部4aの上に前記の化5に示すAlq<sub>3</sub>を用いて膜厚が $500\text{\AA}$ になった発光性の電子輸送層4を形成し、さらにこの電子輸送層4上にマグネシウム・インジウム合金からなる膜厚が $2000\text{\AA}$ の電子注入電極6を形成した構造になっている。そして、上記のホール注入電極2と電子注入電極6とにそれぞれリード線10を接続して、ホール注入電極2に+、電子注入電極6に-のバイアス電圧を印加させるようにしている。

【0046】

【化6】

の電圧を印加すると、非発光性の電子輸送部4aを形成した領域においては、輝度 $2000\text{cd/m}^2$ 、発光ピーク波長 $490\text{nm}$ の青緑色発光が得られる一方、非発光性の電子輸送部4aが形成されていない領域においては、輝度 $1500\text{cd/m}^2$ 、発光ピーク波長 $520\text{nm}$ の緑色発光が得られ、同時に青緑色と緑色との発光を得ることができた。なお、発光スペクトルにより、非発光性の電子輸送部4aを形成した領域における青緑色発光はホール輸送層3に用いたPYR-9によるものであることが、また非発光性の電子輸送部4aに用いたAlq<sub>3</sub>によるものであることが確認された。

【0050】(実施例4) この実施例4の有機EL素子も、上記実施例3の有機EL素子と同様に、前記第2の有機EL素子の例であり、図2に示す構造になっている。

【0051】ここで、この実施例4の有機EL素子においては、発光性の電子輸送層5の材料に、上記実施例3における非発光性の電子輸送部4aに使用した上記のOXD-7と、発光材料である前記のルブレントを用い、

11

上記OXD-7に対してルブレンを5重量%含有させるようにして、両者をホール輸送層3と電子輸送部4aの上に共蒸着させて発光性の電子輸送層5を形成するようにし、それ以外については、上記実施例3と同様にして有機EL素子を得た。

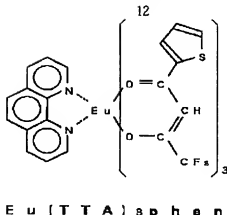
【0052】そして、この実施例4の有機EL素子におけるホール注入電極2と電子注入電極6との間に10Vの電圧を印加すると、非発光性の電子輸送部4aを形成した領域においては、輝度 $2000\text{ cd/m}^2$ 、発光ピーク波長 $490\text{ nm}$ の青緑色発光が得られる一方、非発光性の電子輸送部4aが形成されていない領域においては、輝度 $1000\text{ cd/m}^2$ 、発光ピーク波長 $560\text{ nm}$ の黄色発光が得られ、同時に青緑色と黄色との発光を得ることができた。なお、発光スペクトルにより、非発光性の電子輸送部4aを形成した領域における青緑色発光はホール輸送層3に用いたPYR-9によるものであることが、また非発光性の電子輸送部4aを形成していない領域における黄色発光は電子輸送層4に用いたルブレンによるものであることが確認された。

【0053】(実施例5)この実施例5の有機EL素子は、前記第3の有機EL素子の例であり、図3に示す構造になっている。

【0054】ここで、この実施例5の有機EL素子は、透明なガラス基板1上にインジウム・スズ酸化物(ITO)からなる膜厚が $2000\text{ \AA}$ になった透明なホール注入電極2を形成し、このホール注入電極2上に前記の化1に示すPYR-9を用いて膜厚が $500\text{ \AA}$ になった発光性のホール輸送層3を形成し、このホール輸送層3上に前記の化6に示すOXD-7を用いて膜厚が $100\text{ \AA}$ になった非発光性の電子輸送部4aを部分的に形成し、上記のホール輸送層3とこの電子輸送部4aの上の下記の化7に示すEu(TTA)<sub>3</sub>phenを用いて膜厚が $100\text{ \AA}$ になった発光層5を形成し、この発光層5上に前記の化2に示すMTPDを用いて膜厚が $100\text{ \AA}$ になった非発光性のホール輸送部3aを部分的に形成し、このホール輸送部3aと上記の発光層5の上の前記の化3に示す1AZM-Hexを用いて膜厚が $500\text{ \AA}$ になった発光性の電子輸送層4を形成し、さらにこの電子輸送層4上にマグネシウム・インジウム合金からなる膜厚が $2000\text{ \AA}$ の電子注入電極6を形成した構造になっている。そして、上記のホール注入電極2と電子注入電極6とにそれぞれリード線10を接続して、ホール注入電極2に十、電子注入電極6に一のバイス電圧を印加させるようにしている。

【0055】

【化7】



10

20

30

40

50

【0056】そして、この実施例5の有機EL素子を製造するにあたっては、表面にITOからなるホール注入電極2が形成されたガラス基板1を中性洗剤により洗浄した後、これをアセトン中で20分間、エタノール中で20分間それぞれ超音波洗浄を行なった。

【0057】次いで、ガラス基板1上に形成された上記のホール注入電極2上に前記のPYR-9を真空蒸着させて発光性のホール輸送層3を形成し、このホール輸送層3の一部にメタルマスクを用いて前記のOXD-7を真空蒸着させて非発光性の電子輸送部4aを部分的に形成し、さらにこの電子輸送部4aと上記のホール輸送層3との上に前記のEu(TTA)<sub>3</sub>phenを真空蒸着させて発光層5を形成した。そして、この発光層5上においてメタルマスクを用い、上記の非発光性の電子輸送部4aが設けられていない部分に前記のMTPDを真空蒸着させて非発光性のホール輸送部3aを部分的に形成し、このホール輸送部3aと上記発光層5の上の前記の1AZM-Hexを真空蒸着させて発光性の電子輸送層4を形成し、更にこの電子輸送層4上にマグネシウム・インジウム合金からなる電子注入電極6を真空蒸着により形成した。なお、これらの真空蒸着は、何れもモリブデンボートを用いた抵抗加熱法によって行ない、真空度 $1 \times 10^{-4}$  Torr以下、基板温度 $20 \sim 30^\circ\text{C}$ の条件下で行なった。

【0058】そして、この実施例5の有機EL素子におけるホール注入電極2と電子注入電極6との間に10Vの電圧を印加すると、非発光性の電子輸送部4aを形成した領域においては、輝度 $500\text{ cd/m}^2$ 、発光ピーク波長 $490\text{ nm}$ の青緑色発光が得られ、また非発光性のホール輸送部3aを形成した領域においては、輝度 $200\text{ cd/m}^2$ 、発光ピーク波長 $460\text{ nm}$ の青色発光が得られ、さらに非発光性の電子輸送部4aやホール輸送部3aが形成されていない領域においては、輝度 $50\text{ cd/m}^2$ 、発光ピーク波長 $615\text{ nm}$ の赤色発光が得られ、同時に青緑色と青色と赤色の3色の発光を得ることができた。なお、発光スペクトルにより、非発光性の電子輸送部4aを形成した領域における青緑色発光はホール輸送層3に用いたPYR-9によるものであることが、また非発光性のホール輸送部3aを形成した領域に

おける青色発光は電子輸送層4に用いた1AZM-Hexによるものであることが、また非発光性の電子輸送部4aやホール輸送部3aを形成していない領域における赤色発光は発光層5に用いたEu(TTA);phenによるものであることが確認された。

【0059】(実施例6) この実施例6の有機EL素子を製造するにあたっては、図4に示すように、ガラス基板1上にITOからなるホール注入電極2を線幅d1が0.4mm、中心間隔d2が0.5mmになるようにしてストライプ状に形成した後、これを中性洗剤により洗浄し、さらにアセトン中で20分間、エタノール中で20分間それぞれ超音波洗浄を行なった。

【0060】次に、図5に示すように、ホール注入電極2が形成されたガラス基板1上に、前記の化2に示すMTPDに対して前記の化4に示すルプレンを5重量%含有されるようにして、両者を共蒸着させて発光性のホール輸送層3を形成した。

【0061】そして、図6に示すように0.45mm角の穴11が0.55mm間隔で縦、横に並んで開口されたメタルマスク11を用い、このメタルマスク11における0.45mm角の穴11aの中心とホール注入電極2のストライプの中心が重なるようにして、図7に示すように、上記のホール輸送層3上に前記の化2に示すMTPDを真空蒸着させて、メタルマスク11の各穴11aの部分に対応した非発光性のホール輸送部3aを形成した。

【0062】次に、図8に示すように、上記のように非発光性のホール輸送部3aが形成された領域を含むホール輸送層3上に、前記の化1に示す1AZM-Hexを真空蒸着させて発光性の電子輸送層4を形成し、さらにこの電子輸送層4上に真空蒸着によりマグネシウム・インジウム合金からなる電子注入電極6を、図9に示すように、前記のホール注入電極2と直交する方向において、ホール注入電極2の場合と同様に線幅d1が0.4mm

m、中心間隔d2が0.5mmになるようにしてストライプ状に形成し、このストライプ状になった電子注入電極6の中心が非発光性のホール輸送部3aのドットの中心と重なるようにした。

【0063】なお、前記の各真空蒸着は、何れもモリブデンボートを用いた抵抗加熱法によって行ない、真空度 $1 \times 10^{-4}$  Torr以下、基板温度20〜30℃という条件で行なった。

【0064】このようにして作成したこの実施例6の有機EL素子からなるディスプレイパネルにおいて、上記のホール注入電極2と電子注入電極6との間に10Vの電圧を印加すると、図10に示すように、非発光性のホール輸送部3aを形成した格子部分においては、輝度400cd/m<sup>2</sup>、発光ピーク波長460nmの1AZM-Hexによる青色発光が得られる一方、非発光性のホール輸送部3aが形成されていない格子部分においては、輝度800cd/m<sup>2</sup>、発光ピーク波長560nmのルプレンの黄色発光が得られ、このディスプレイを駆動させると、青色から黄色までの様々な発光色による画像を表示することができた。

【0065】なお、上記の実施例2、4、6の有機EL素子においては、ホール輸送層3や電子輸送層4に含有させる発光材料にルプレンを使用したが、使用する発光材料はこれに限定されず、公知の様々な発光材料を使用することができ、例えば、下記の表1に示すような発光色及び発光ピーク波長を有する、化8に示したテトラフェニルブタジエン、化9に示したクマリン343、化10に示したクマリン6、化11に示したキナクリドン、化12に示したNK-757、化13に示したDCM、化14に示したZn(ac)：等を用いることができる。

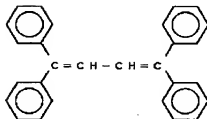
【0066】

【表1】

発光材料	発光色	発光ピーク波長
テトラフェニルブタジエン	青	450nm
クマリン343	青緑	490nm
クマリン6	緑	510nm
キナクリドン	黄緑	540nm
NK-757	黄	560~590nm
DCM	橙	580~600nm
Zn(ac) <sub>2</sub>	赤	650nm

【0067】

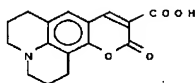
【化8】



テトラフェニルブタジエン

【0068】

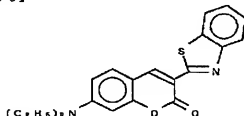
【化9】



クマリン343

【0069】

【化10】

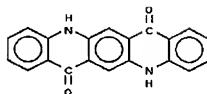


クマリン6

【0070】

【化11】

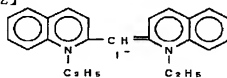
20



キナクリドン

【0071】

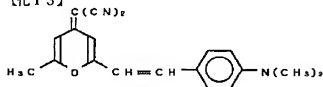
【化12】



NK-757

【0072】

【化13】



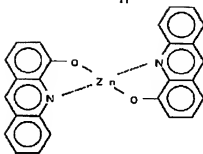
DCM

【0073】

【化14】

40

50

Zn(ac)<sub>2</sub>

【0074】また、発光材料を含有させる量についても、上記の各実施例においては、発光材料であるルプレンの含有量を5重量%にしたが、その含有量はこれに限定されず、使用する発光材料等の性質に合わせ、また発光色や輝度を調整するために、必要に応じて変更させることができる。

【0075】また、上記の各実施例の有機E<sub>L</sub>素子においては、ホール注入電極2や電子注入電極6と接触するホール輸送層3や電子輸送層4を単層としたが、ホールや電子の注入及び輸送性を高めるために、ホール注入電極2と接触する層を、イオン化ポテンシャルの異なる複数のホール輸送材料を用いた積層又は混合層にしたり、また電子注入電極6と接触する層を、電子親和力の異なる複数の電子輸送材料を用いた積層又は混合層にすることもできる。

【0076】また、上記の各実施例の有機E<sub>L</sub>素子においては、非発光性のホール輸送部3aや非発光性の電子輸送部4aの膜厚を100Åと非常に薄くしたが、これは、これらの部分が厚くなって抵抗が増加して輝度が低下するのを極力抑えるためである。しかし、非発光性のホール輸送部3aや非発光性の電子輸送部4aの膜厚はこれに限定されるものではなく、ホール輸送部3aや電子輸送部4aが形成された領域より他の領域における輝度が低い場合には、ホール輸送部3aや電子輸送部4aの膜厚を厚くして輝度を低くする等、他の発光領域とのバランスや表示の効果を考慮して適当な膜厚に変えることができる。

【0077】

【発明の効果】以上詳述したように、この発明における有機E<sub>L</sub>素子においては、非発光性のホール輸送部や非発光性の電子輸送部を設け、これらを設けた部分と設けていない部分とにおいて、それぞれ異なった色彩の発光が行なわれるようにしたため、この非発光性のホール輸送部や非発光性の電子輸送部を文字や絵等の適当な形状に形成することにより表示品位の高い様々な表示が可能になり、これを交通標識や案内板等として好適に利用できるようになった。

【0078】また、この発明における有機E<sub>L</sub>素子において、非発光性のホール輸送部や非発光性の電子輸送部を設けた部分、これらが設けられていない部分とをマトリクスに配し、これをマトリクス電極による駆動や液晶フィルターのON、OFFにより制御すると、表示品位の高いマルチカラーの表示やフルカラーの表示が簡単にこなえるようになった。

【図面の簡単な説明】

【図1】この発明の実施例1、2における第1の有機E<sub>L</sub>素子の素子構造を示した概略説明図である。

【図2】この発明の実施例3、4における第2の有機E<sub>L</sub>素子の素子構造を示した概略説明図である。

【図3】この発明の実施例5における第3の有機E<sub>L</sub>素子の素子構造を示した概略説明図である。

【図4】この発明の実施例6における有機E<sub>L</sub>素子を製造するにあたって、ガラス基板上にホール注入電極をストライプ状に形成した状態を示した平面図である。

【図5】実施例6の有機E<sub>L</sub>素子を製造するにあたって、上記のホール注入電極上に発光性のホール輸送層を形成した状態を示した平面図である。

【図6】実施例6の有機E<sub>L</sub>素子を製造するにあたって、上記のホール輸送層上に非発光性のホール輸送部を部分的に形成するのに使用したメタルマスクの平面図である。

【図7】実施例6の有機E<sub>L</sub>素子を製造するにあたって、上記のホール輸送層上に非発光性のホール輸送部を部分的に形成した状態を示した平面図である。

【図8】実施例6の有機E<sub>L</sub>素子を製造するにあたって、非発光性のホール輸送部が部分的に形成されたホール輸送層上に発光性の電子輸送層を形成した状態を示した平面図である。

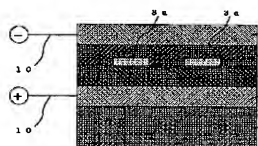
【図9】実施例6の有機E<sub>L</sub>素子を製造するにあたって、上記の電子輸送層上に電子注入電極をストライプ状に形成した状態を示した平面図である。

【図12】実施例6の有機E<sub>L</sub>素子において、非発光性のホール輸送部が設けられた部分と設けられていない部分とにおいて発光する色彩の状態を示した平面図である。

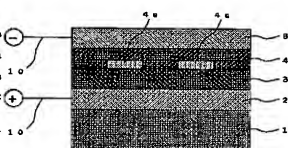
【符号の説明】

- 1 基板
- 2 ホール注入電極
- 3 発光性のホール輸送層
- 3a 非発光性のホール輸送部
- 4 発光性の電子輸送層
- 4a 非発光性の電子輸送部
- 5 発光層
- 6 電子注入電極

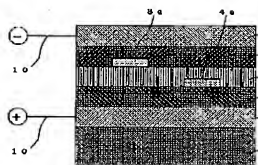
【図1】



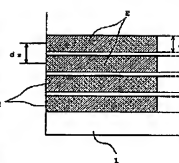
【図2】



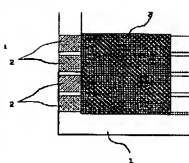
【図3】



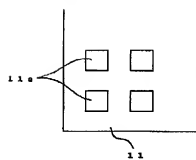
【図4】



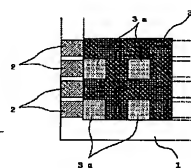
【図5】



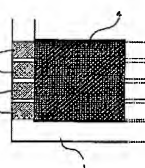
【図6】



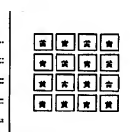
【図7】



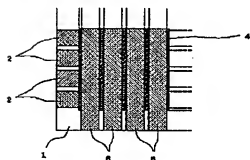
【図8】



【図10】



【図9】



## 【手続補正書】

【提出日】平成 7 年 10 月 26 日

## 【手続補正 1】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】図面の簡単な説明

【補正方法】変更

【補正内容】

【図面の簡単な説明】

【図 1】この発明の実施例 1、2 における第 1 の有機 E L 素子の素子構造を示した概略説明図である。

【図 2】この発明の実施例 3、4 における第 2 の有機 E L 素子の素子構造を示した概略説明図である。

【図 3】この発明の実施例 5 における第 3 の有機 E L 素子の素子構造を示した概略説明図である。

【図 4】この発明の実施例 6 における有機 E L 素子を製造するにあたって、ガラス基板上にホール注入電極をストライプ状に形成した状態を示した平面図である。

【図 5】実施例 6 の有機 E L 素子を製造するにあたって、上記のホール注入電極上に発光性のホール輸送層を形成した状態を示した平面図である。

【図 6】実施例 6 の有機 E L 素子を製造するにあたって、上記のホール輸送層上に非発光性のホール輸送部を部分的に形成するのに使用したメタルマスクの平面図である。 \*

\* 【図 7】実施例 6 の有機 E L 素子を製造するにあたって、上記のホール輸送層上に非発光性のホール輸送部を部分的に形成した状態を示した平面図である。

【図 8】実施例 6 の有機 E L 素子を製造するにあたって、非発光性のホール輸送部が部分的に形成されたホール輸送層上に発光性の電子輸送層を形成した状態を示した平面図である。

【図 9】実施例 6 の有機 E L 素子を製造するにあたって、上記の電子輸送層上に電子注入電極をストライプ状に形成した状態を示した平面図である。

【図 10】実施例 6 の有機 E L 素子において、非発光性のホール輸送部が設けられた部分と設けられていない部分とにおいて発光する色彩の状態を示した平面図である。

【符号の説明】

- 1 基板
- 2 ホール注入電極
- 3 発光性のホール輸送層
- 3 a 非発光性のホール輸送部
- 4 発光性の電子輸送層
- 4 a 非発光性の電子輸送部
- 5 発光層
- 6 電子注入電極

フロントページの続き

(72)発明者 竹内 孝介  
大阪府守口市京阪本通 2 丁目 5 番 5 号 三  
洋電機株式会社内

(72)発明者 柴田 賢一  
大阪府守口市京阪本通 2 丁目 5 番 5 号 三  
洋電機株式会社内